

DIALOG(R)File 345:Inpadoc/Fam.& Legal Stat  
(c) 2004 EPO. All rts. reserv.

12265836

Basic Patent (No,Kind,Date): JP 7048385 A2 950221 <No. of Patents: 002>

**ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT AND COMPOUND HAVING  
ALUMINUM COMPLEX**

**STRUCTURE** (English)

Patent Assignee: IDEMITSU KOSAN CO

Author (Inventor): HIRONAKA YOSHIO; NAKAMURA HIROAKI; KUSUMOTO  
TADASHI

IPC: \*C07F-005/06; C07F-007/02; C09K-011/06; H05B-033/14

CA Abstract No: 123(24)325390D

Derwent WPI Acc No: C 95-126161

Language of Document: Japanese

Patent Family:

Patent No	Kind	Date	Applic No	Kind	Date
<b>JP 7048385</b>	A2	950221	JP 94106954	A	940520 (BASIC)
US 5466392	A	951114	US 253052	A	940602

Priority Data (No,Kind,Date):

JP 94106954 A 940520  
JP 93131875 A 930602

DIALOG(R)File 347:JAPIO  
(c) 2004 JPO & JAPIO. All rts. reserv.

04755785     \*\*Image available\*\*

ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT AND COMPOUND HAVING  
ALUMINUM COMPLEX  
STRUCTURE

PUB. NO.:     **07-048385** [JP 7048385 A]  
PUBLISHED:     February 21, 1995 (19950221)  
INVENTOR(s):   HIRONAKA YOSHIO  
                 NAKAMURA HIROAKI  
                 KUSUMOTO TADASHI  
APPLICANT(s): IDEMITSU KOSAN CO LTD [330172] (A Japanese Company or  
                 Corporation), JP (Japan)  
APPL. NO.:     06-106954 [JP 94106954]  
FILED:           May 20, 1994 (19940520)  
INTL CLASS:     [6] C07F-005/06; C07F-007/02; C09K-011/06; H05B-033/14  
JAPIO CLASS:   14.1 (ORGANIC CHEMISTRY -- Organic Compounds); 13.9  
                 (INORGANIC CHEMISTRY -- Other); 43.4 (ELECTRIC POWER --  
                 Applications)

ABSTRACT

PURPOSE: To obtain a new element, having a new aluminum complex structure and excellent characteristics of high brightness, luminous efficiency and longevity, excellent in adhesion to an electrode and useful as luminous elements, electronic materials, etc., of various display devices.

CONSTITUTION: This organic electroluminescent element contains a compound having an aluminum complex structure expressed by formula I {X is a group expressed by the formula Ar(sup 1)-Y-Ar(sup 2) (Ar(sup 1) and Ar(sup 2) are each (substituted)6-24C aromatic rings; Y is an alkylene, a cycloalkylene, etc.), a group expressed by formula II (R(sup 1) and R(sup 2) are each 6-12C aryls, 1-12C alkyls, etc.), etc.; L(sup 1) to L(sup 4) are each ligands expressed by formula III or IV}, e.g. an organic electroluminescent element having an aluminum complex structure expressed by formula V. The compound expressed by formula I is obtained by stirring an 8-hydroxyquinoline derivative and an aluminum alkoxide in a solvent such as an alcohol under heated conditions, etc.

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平7-48385

(43) 公開日 平成7年(1995)2月21日

(51) Int. Cl.<sup>6</sup>  
C07F 5/06  
7/02  
C09K 11/06  
H05B 33/14

識別記号

F I

E 7457-4H  
B  
Z 9159-4H

審査請求 未請求 請求項の数 8 O L (全23頁)

(21) 出願番号 特願平6-106954

(22) 出願日 平成6年(1994)5月20日

(31) 優先権主張番号 特願平5-131875

(32) 優先日 平5(1993)6月2日

(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(71) 出願人 000183646

出光興産株式会社

東京都千代田区丸の内3丁目1番1号

(72) 発明者 弘中 義雄

千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 出光興産株式会社内

(72) 発明者 中村 浩昭

千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 出光興産株式会社内

(72) 発明者 楠本 正

千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 出光興産株式会社内

(74) 代理人 弁理士 大谷 保

(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子およびアルミニウム錯体構造を有する化合物

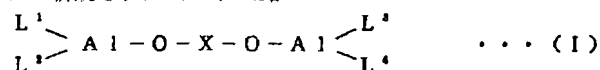
(57) 【要約】

【目的】 高輝度、高発光効率及び長寿命の優れた特性を有する有機エレクトロルミネッセンス素子、及びこの素子の構成成分として用いられる新規なアルミニウム錯

体構造を有する化合物を開発すること。

【構成】 本発明は、一般式 (I)

【化1】

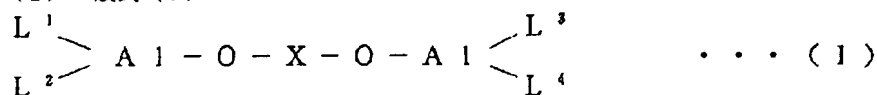


〔式中の各記号は明細書に定義した通りである。〕で表されるアルミニウム錯体構造を有する化合物を含有する

有機エレクトロルミネッセンス素子、及び該アルミニウム錯体構造を有する化合物である。

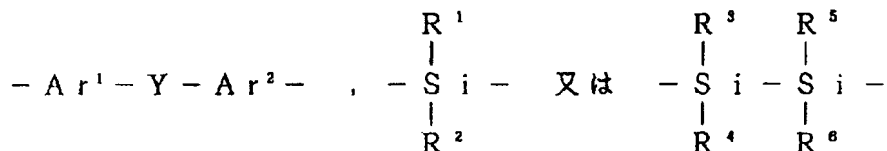
【特許請求の範囲】

【請求項1】 (1) 一般式 (I)



〔式中、Xは

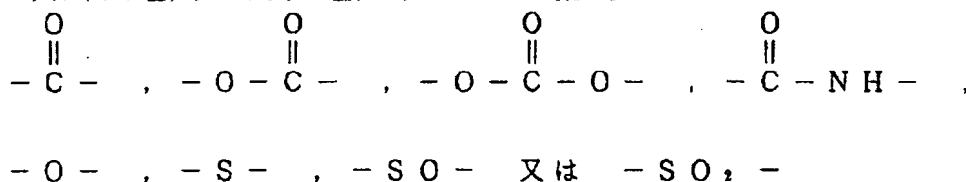
【化1】



(式中、 $Ar^1$  及び  $Ar^2$  は、それぞれ独立に置換又は無置換の炭素数6～24の芳香環であり、Yはアルキレン基、シクロアルキレン基、アルキリデン基、シクロア

ルキリデン基、アリーレンジオキシ基、アルキレンジオキシ基、

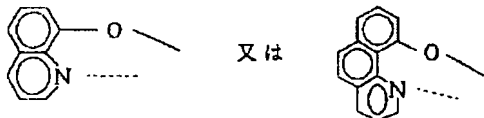
【化2】



を示す。 $R^1 \sim R^6$  は、それぞれ独立に炭素数6～12のアリール基、炭素数1～12のアルキル基又は炭素数5～12のシクロアルキル基を示す。) で表される基を示し、 $L^1 \sim L^4$  は、それぞれ独立に置換又は無置換の

ルキリデン基、アリーレンジオキシ基、アルキレンジオキシ基、

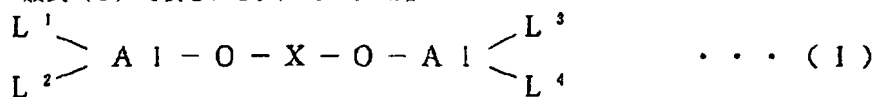
【化3】



で表される配位子を示す。) で表されるアルミニウム錯体構造を有する化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。

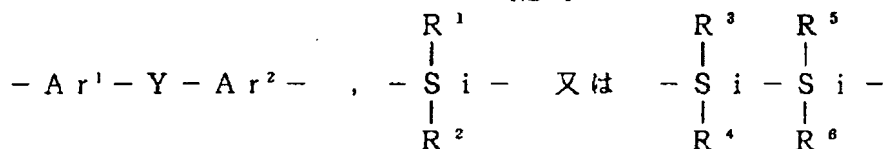
【請求項2】 一般式 (I) で表されるアルミニウム錯体構造を有する化合物において、置換基が炭素数1～6のアルキル基若しくはアルコキシ基、フェニル基、シクロヘキシル基、ハロゲン原子、ニトロ基又はシアノ基である請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項3】 一般式 (I) で表されるアルミニウム錯



〔式中、Xは

【化4】



(式中、 $Ar^1$  及び  $Ar^2$  は、それぞれ独立に置換又は無置換の炭素数6～24の芳香環であり、Yはアルキレ

ン基、シクロアルキレン基、アルキリデン基、シクロアルキリデン基、アリーレンジオキシ基、アルキレンジオ

【請求項4】 少なくとも電子注入輸送層が、一般式 (I) で表されるアルミニウム錯体構造を有する化合物を含有してなる請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

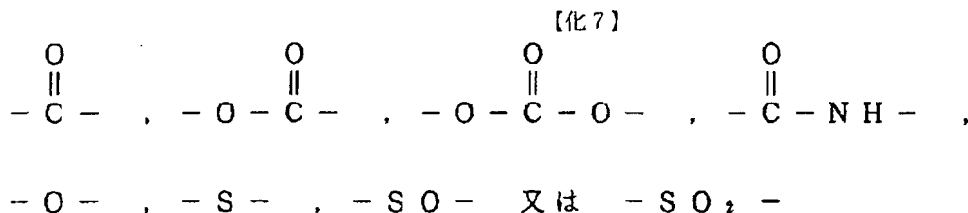
【請求項5】 少なくとも発光層が、一般式 (I) で表されるアルミニウム錯体構造を有する化合物を含有してなる請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項6】 素子構成が陽極／正孔注入輸送層／発光層／電子注入輸送層／陰極であり、かつ発光層又は電子注入輸送層あるいはその両方が、一般式 (I) で表されるアルミニウム錯体構造を有する化合物を含有してなる請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

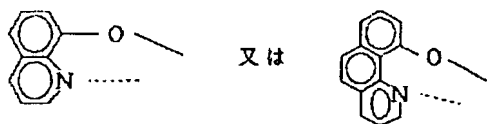
【請求項7】 一般式 (I)

【化5】

キシ基,



を示す。R<sup>1</sup> ~ R<sup>2</sup> は、それぞれ独立に炭素数6~12のアリール基、炭素数1~12のアルキル基又は炭素数5~12のシクロアルキル基を示す。) で表される基を  
【化8】



で表される配位子を示す。) で表されることを特徴とするアルミニウム錯体構造を有する化合物。

【請求項8】 一般式(1)において、置換基が炭素数1~6のアルキル基若しくはアルコキシ基、フェニル基、シクロヘキシル基、ハロゲン原子、ニトロ基又はシアノ基である請求項7記載のアルミニウム錯体構造を有する化合物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、新規な有機エレクトロルミネッセンス素子及びそれに用いる新規なアルミニウム錯体構造を有する化合物に関し、さらに詳しくは、高輝度、高発光効率及び長寿命の優れた特性を有する有機エレクトロルミネッセンス素子、及びその構成成分として用いることにより、該素子に上記の優れた特性をもたらすアルミニウム錯体構造を有する化合物に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 従来、有機エレクトロルミネッセンス素子(以下、有機EL素子と記す。)に電子注入輸送層を設けて発光効率を高める試みがなされてきた。この場合、エキサイプレックスの形成が見られたり、高輝度の発光は得られるものの発光寿命が短いという欠点があった。また、長時間の通電により金属電極と有機層の剥離

が発生したり、有機層や電極が結晶化し白濁化して発光輝度が低下するため、このような現象を防ぐ必要があった。特定のアルミニウム錯体構造を有する化合物を有機EL素子の構成成分として用いた例として、米国特許第5,141,671号(1992年)や米国特許第5,150,006号(1992年)で開示された化合物がある。この化合物は、多環芳香族化合物をドーブして青色発光する発光層の発光材料に用いている。しかし、この発明では、さらに電子注入輸送層としてアルミニウム-キノリン錯体を用いており、電子注入輸送層を用いない素子においては発光効率が低いという問題があった。さらに、ヨーロッパ公開特許第579151A2号公報には、特定のアルミニウム錯体を用いた有機EL素子が開示されている。しかしながら、このアルミニウム錯体は、本発明のアルミニウム錯体構造を有する化合物とは異なるものである。

【0003】

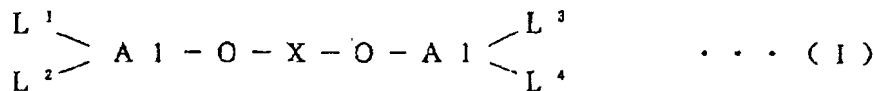
【発明が解決しようとする課題】 本発明は、発光層又は電子注入輸送層あるいはその両方に新規なアルミニウム錯体構造を有する化合物を用い、高輝度、高発光効率及び長寿命の優れた特性を有する有機EL素子を提供することを目的としてなされたものである。

【0004】

【課題を解決するための手段】 そこで、本発明者らは、上記目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、特定のアルミニウム錯体構造を有する化合物を有機EL素子の構成成分として用いることにより、その目的を達成しうることを見出した。本発明は、かかる知見に基づいて完成したものである。すなわち、本発明の第一の目的は、一般式(1)

【0005】

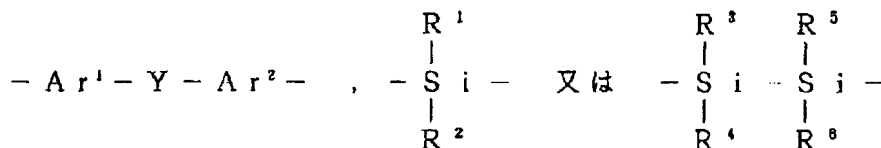
【化9】



【0006】 【式中、Xは

【0007】

【化10】

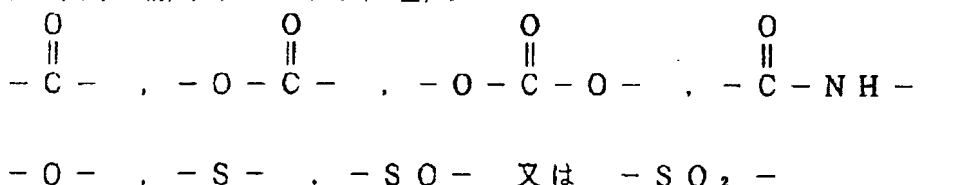


【0008】(式中、 $Ar^1$  及び  $Ar^2$  は、それぞれ独立に置換又は無置換の炭素数6~24の芳香環であり、Yはアルキレン基、シクロアルキレン基、アルキリデン基、シクロアルキリデン基、アリーレンジオキシ基、ア

ルキレンジオキシ基、

【0009】

【化11】



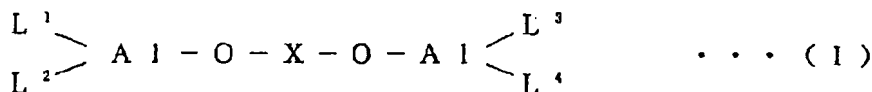
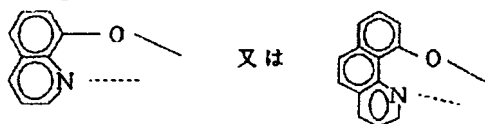
【0010】を示す。 $R^1 \sim R^2$  は、それぞれ独立に炭素数6~12のアリール基、炭素数1~12のアルキル基又は炭素数5~12のシクロアルキル基を示す。)で表される基を示し、 $L^1 \sim L^4$  は、それぞれ独立に置換又は無置換の

【0012】で表される配位子を示す。)で表されるアルミニウム錯体構造を有する化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子を提供するものである。また、第二の目的は、上記一般式(1)で表されるアルミニウム錯体構造を有する化合物を提供するものである。

【0013】本発明の有機EL素子は、一般式(1)

【0011】

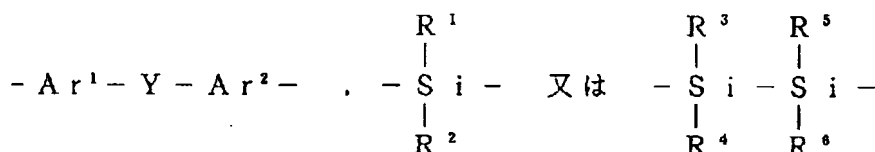
【化12】



【0015】で表されるアルミニウム錯体構造を有する化合物を含有するものであり、該一般式(1)において、Xは、

【0016】

【化14】

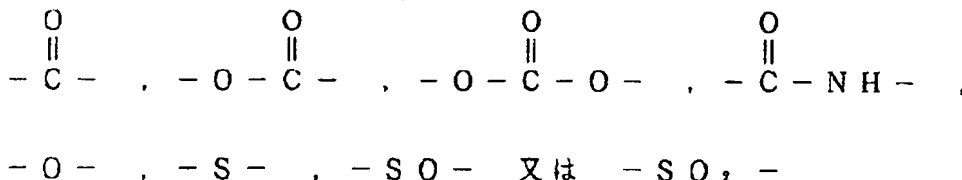


【0017】で表される基を示す。ここで、 $Ar^1$  及び  $Ar^2$  は、それぞれ独立に置換又は無置換の炭素数6~24の芳香環であり、Yはアルキレン基、シクロアルキレン基、アルキリデン基、シクロアルキリデン基、アリー

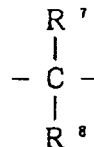
レンジオキシ基、アルキレンジオキシ基、

【0018】

【化15】



【0019】を示す。アルキレン基としては、炭素数1~10のもの、例えばメチレン基、エチレン基、プロピレン基、ブチレン基、ペンチレン基、ヘキシレン基、オクチレン基などが好ましく挙げられ、これらは直鎖状でも分岐鎖状であってもよい。アルキリデン基としては、



【0020】

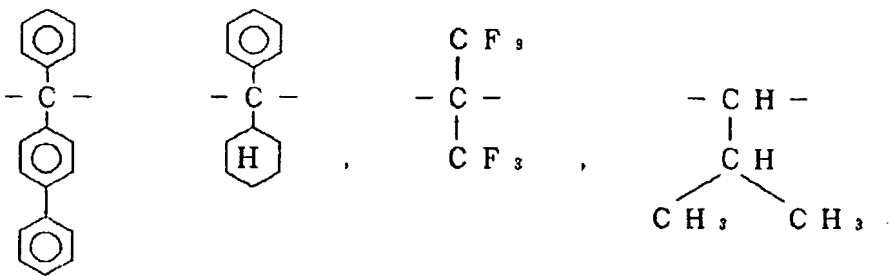
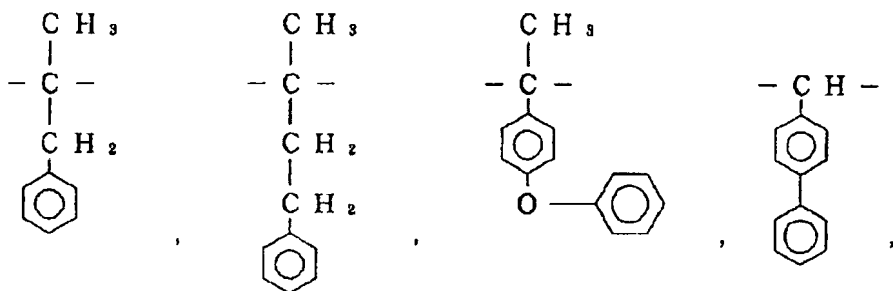
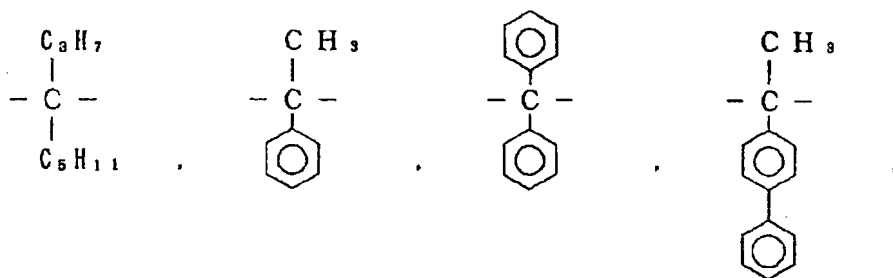
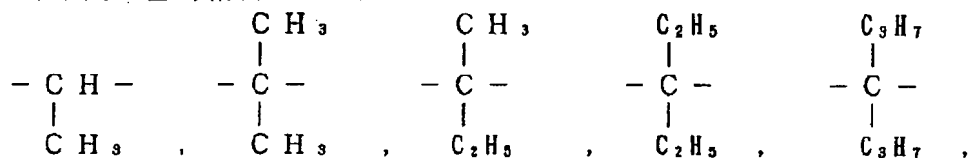
【化16】

【0021】(式中、 $R^1$  及び  $R^2$  は、それぞれ独立に水素原子、炭素数1~12のアルキル基、炭素数5~12のシクロアルキル基、炭素数6~12のアリール基又

はトリフルオロメチル基を示すが、いずれか一方は水素原子以外の基である。) で表される基を挙げることができる。このアリキリデン基の具体例としては、

【0022】

【化17】



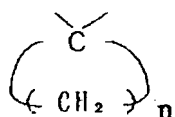
【0023】などが挙げられる。また、シクロアルキレン基としては、例えば、炭素数5~12のものが好ましく挙げられる。そして、シクロアルキリデン基、アリーレンジオキシ基、アルキレンジオキシ基は、例えば、次

のものなどが挙げられる。

【0024】

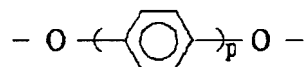
【化18】

## シクロアルキリデン基



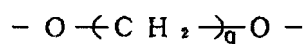
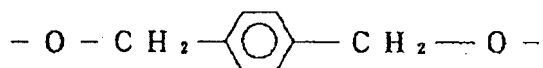
n : 4 ~ 1 1

アリーレンジオキシ基



p : 1 ~ 6

## アルキレンジオキシ基


$$q : 1 \sim 6$$


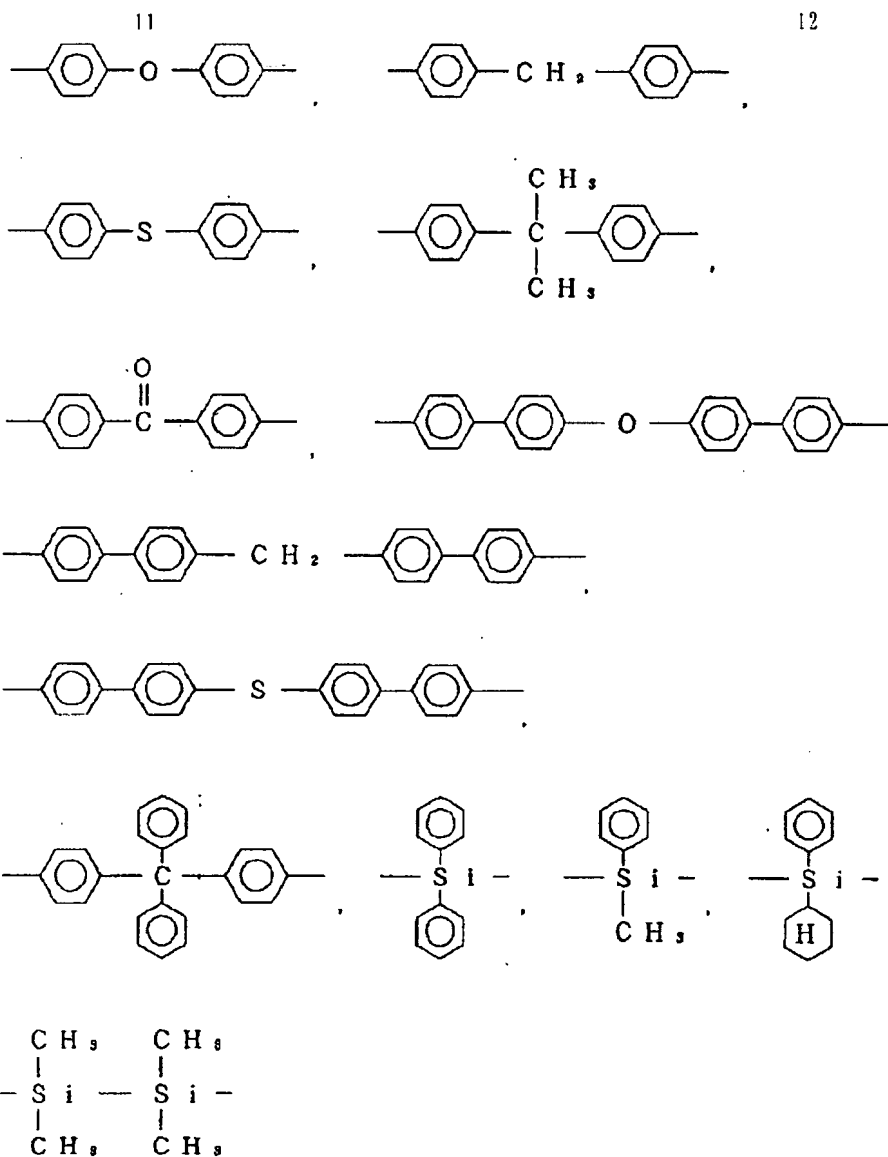
【0025】さらに、 $R^1 \sim R^6$  は、それぞれ独立に炭素数6～12のアリール基、炭素数1～12のアルキル基又は炭素数5～12のシクロアルキル基を示す。また、 $Ar^1$ 、 $Ar^2$  が置換基を有する場合、置換基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、イソブチル基、*tert*-ブチル基、*sec*-ブチル基、イソペンチル基、*ter*

ターベンチル基、ネオペンチル基、ヘキシル基、イソヘキシル基などの炭素数1～6のアルキル基、これらに対応するアルコキシ基、フェニル基、シクロヘキシル基、シアノ基、ハロゲン原子（塩素、フッ素、臭素）、ニトロ基などが挙げられる。該Xの具体例としては、

【0 0 2 6】

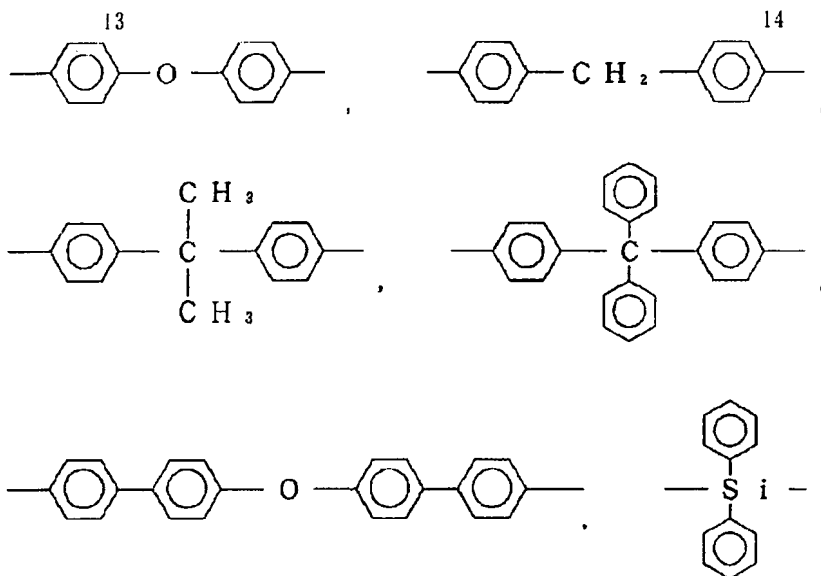
【化 19】





【0027】などが挙げられるが、これらの中では、  
【0028】

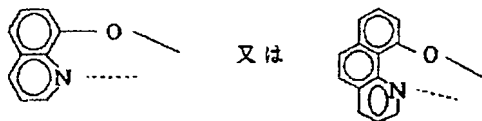
【化20】



【0029】が好適である。また、一般式(1)において、 $L' \sim L'$  は、それぞれ置換又は無置換の

【0030】

【化21】



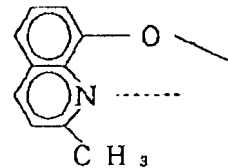
【0031】で表される基を示す。ここで、置換基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、イソブチル基、*tert*-ブチル基、*sec*-ブチル基、イソペンチル基、*tert*-ペンチル基、ネオペンチル基、ヘキシル基、イソヘキシル基などの炭素数1~6のアルキル基、これらに対応するアルコキシ基、フェニル基、シクロヘキシル基、シアノ基、ハロゲン原子(塩素、フッ素、臭素)、ニト

ロ基などが挙げられる。

【0032】該 $L' \sim L'$  としては、いずれもが

【0033】

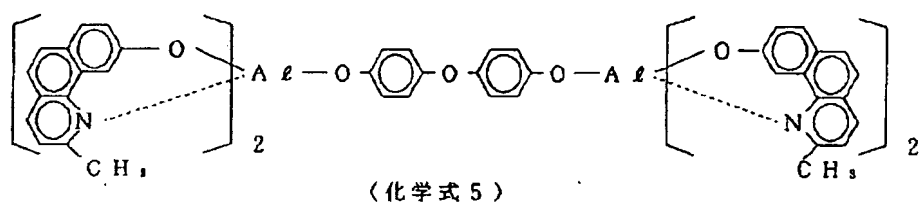
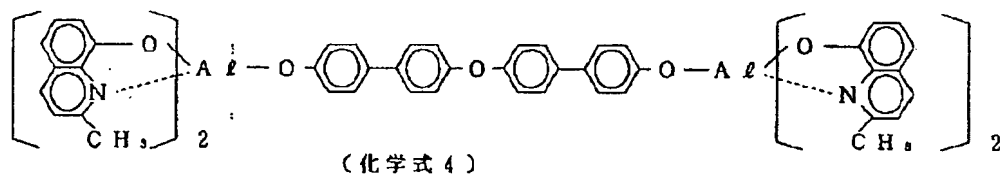
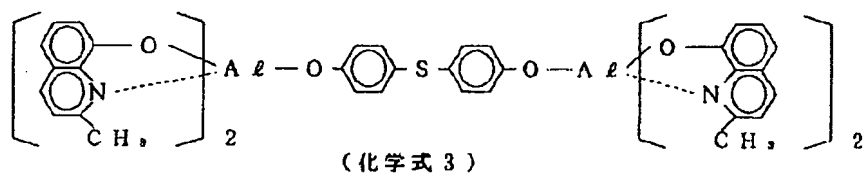
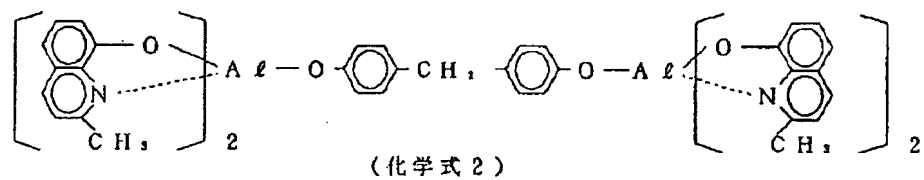
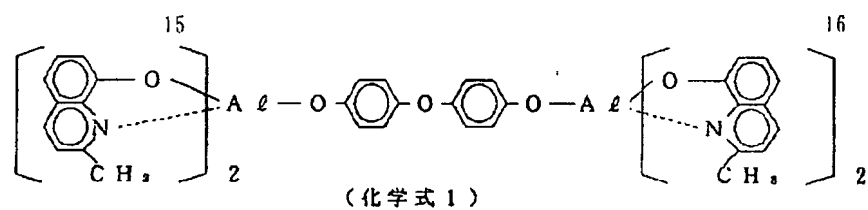
20 【化22】



【0034】で表される2-メチルキノリル-8-オキシ基であるものが好適である。本発明における上記一般式(1)で表されるアルミニウム錯体構造を有する化合物の具体例としては、

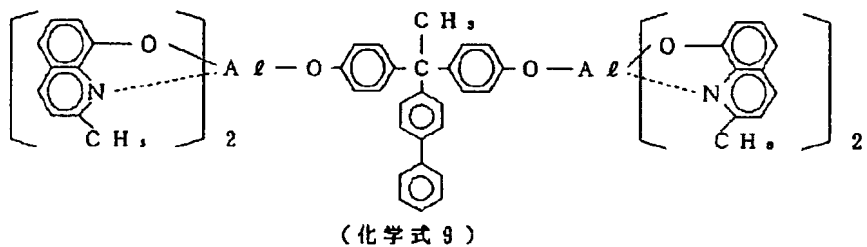
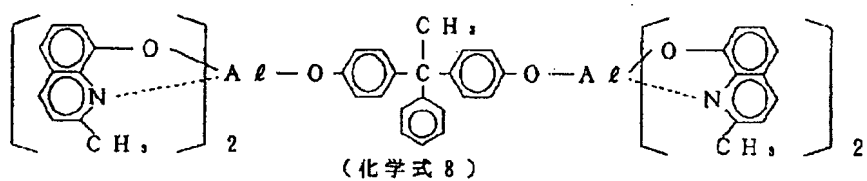
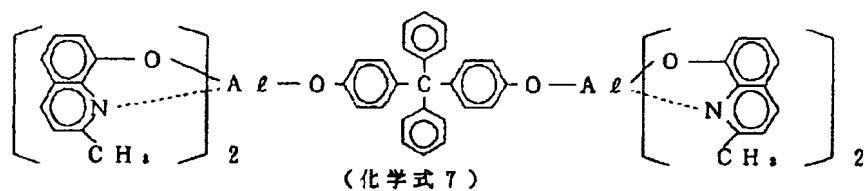
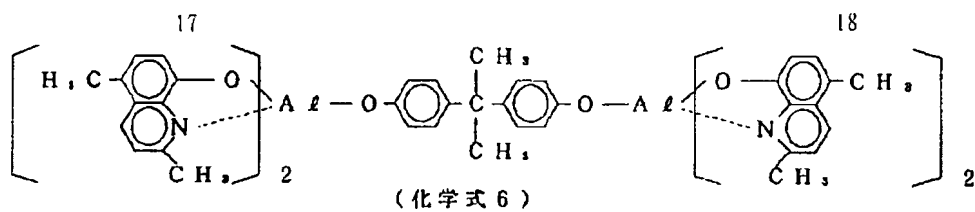
【0035】

【化23】



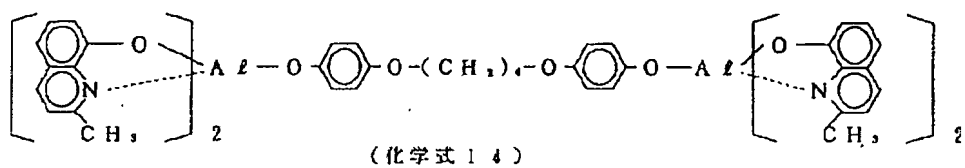
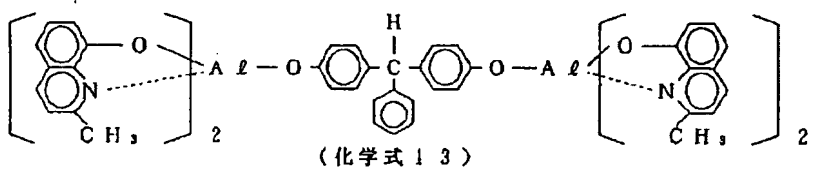
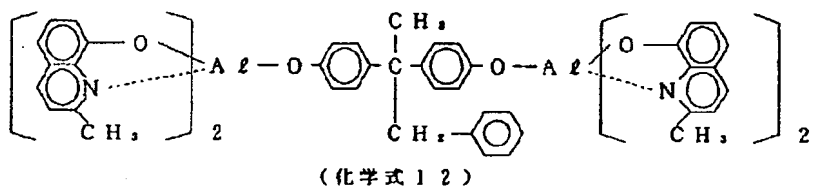
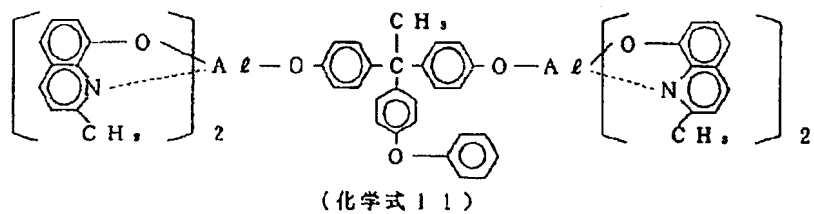
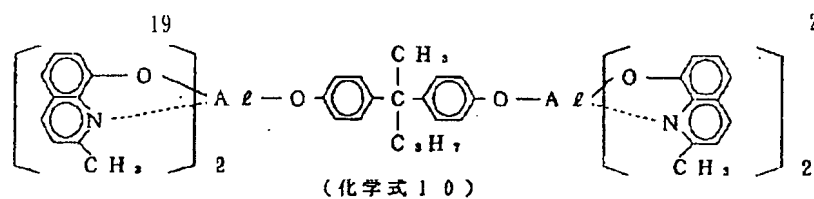
【0036】

【化24】



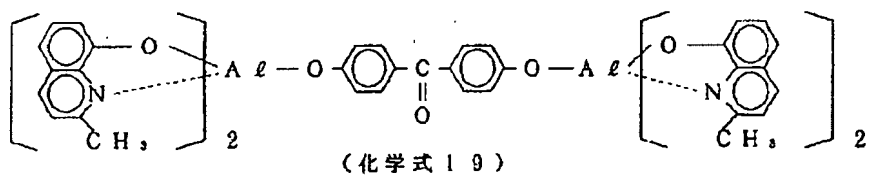
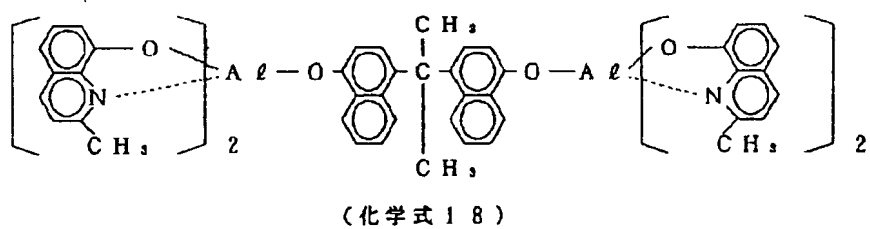
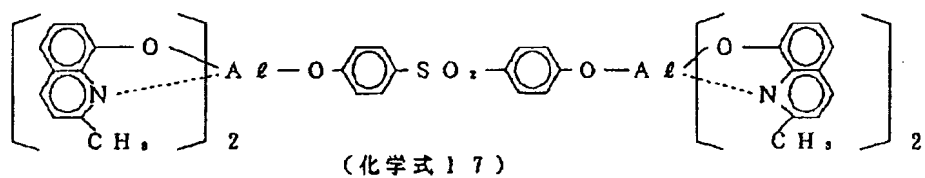
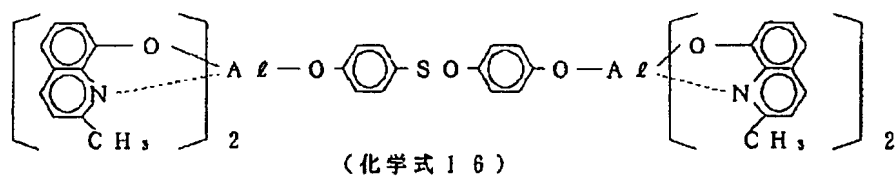
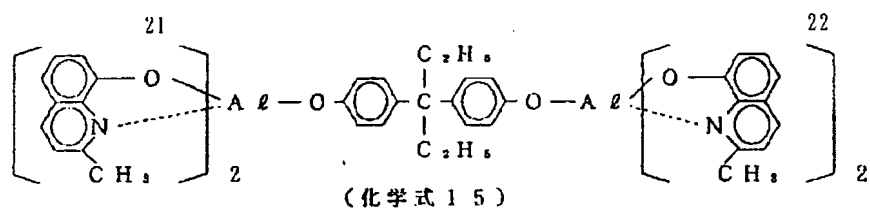
【 0 0 3 7 】

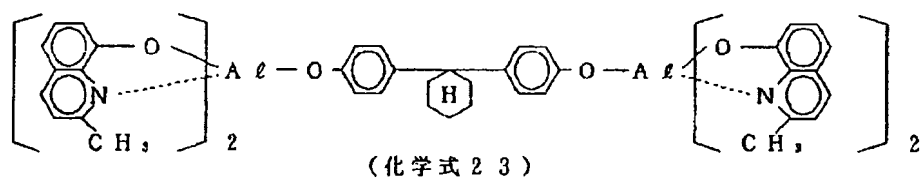
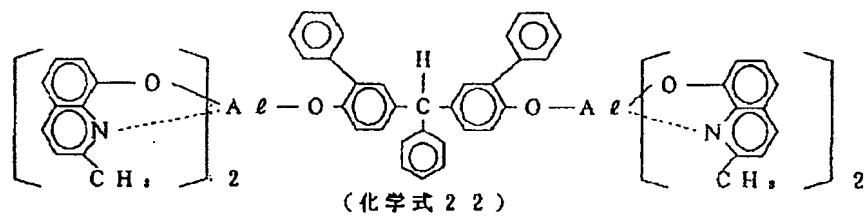
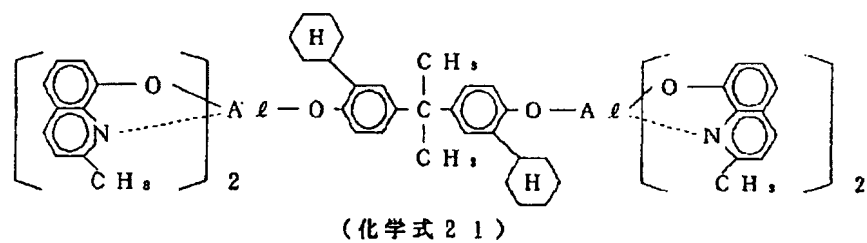
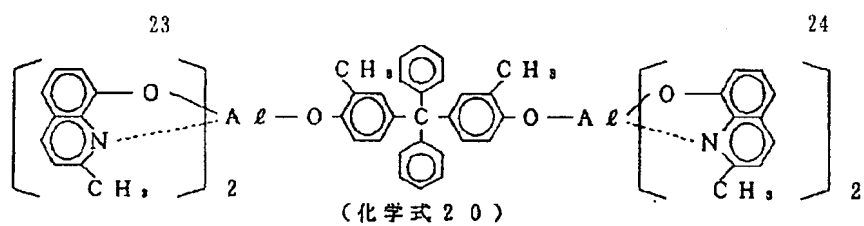
【 化 2 5 】

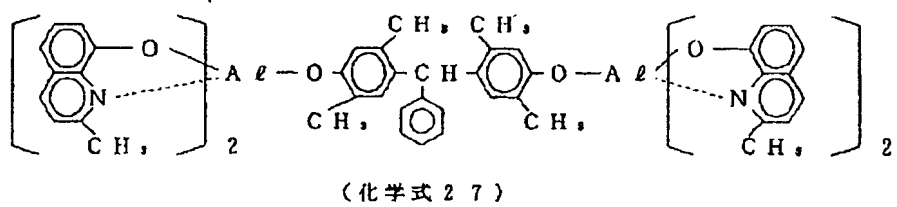
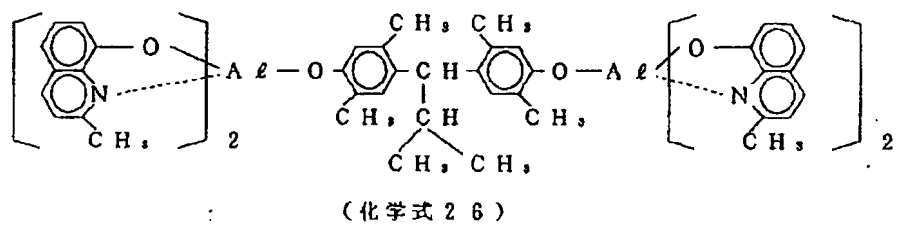
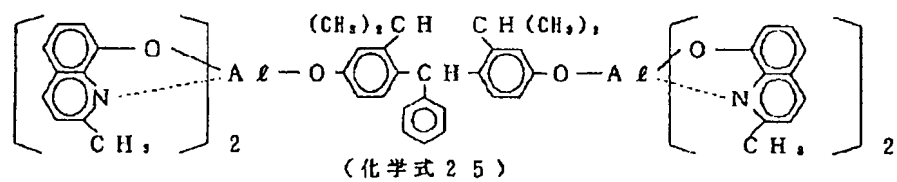
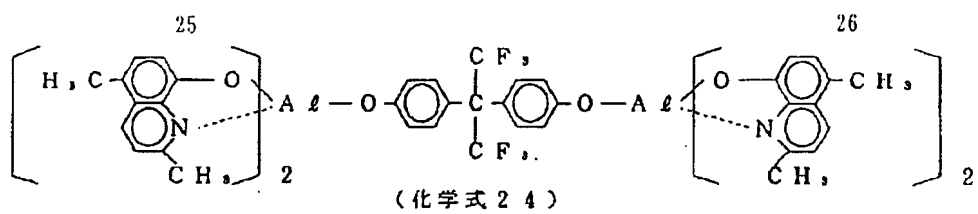


[ 0 0 3 8 ]

[ 化 2 6 ]



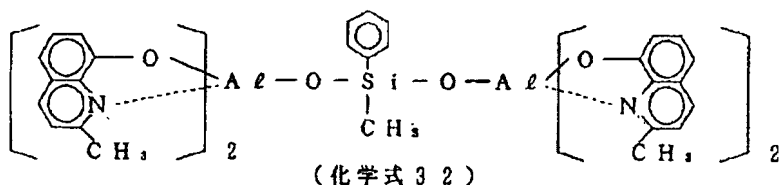
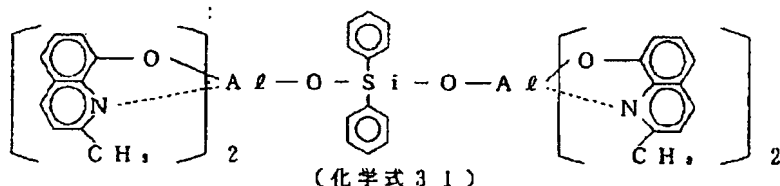
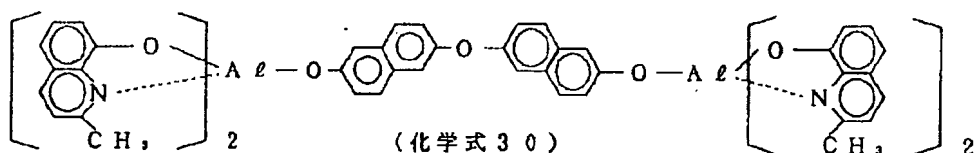
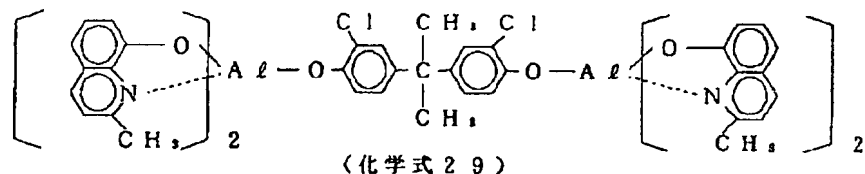
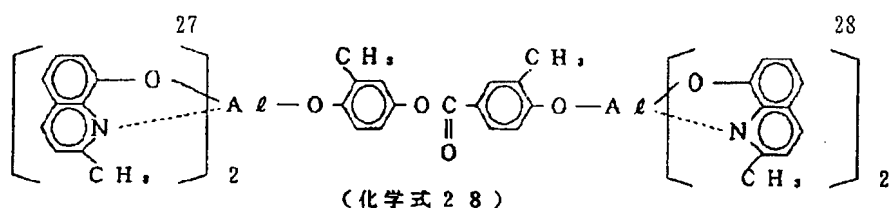




[ 0 0 4 1 ]

[ 化 2 9 ]





【0042】などが挙げられる。本発明のアルミニウム錯体構造を有する化合物は、上記例で示されるように化合物中に芳香族環又は置換シリレン基を含み、特にアルミニウム錯体を二量化させることにより低分子化合物では得られなかった種々の特性を発現させることを可能にした。すなわち、分子量を増加させることにより融点を高くし、素子の発熱による化合物の溶融や結晶化を防ぎ、分子の立体効果により結晶化を抑え薄膜性の向上を可能とした。

【0043】本発明は、上記一般式(1)で表されるアルミニウム錯体構造を有する化合物を含有する有機EL素子であり、その素子構成としては、例えば陽極/正孔注入輸送層/発光層/電子注入輸送層/陰極、陽極/発光層/電子注入輸送層/陰極、陽極/正孔注入輸送層/発光層/陰極、陽極/発光層/陰極型などが挙げられる。上記一般式(1)で表されるアルミニウム錯体構造を有する化合物は、好ましくは発光層、電子注入輸送層を構成するものである。本発明の素子構成においては、正孔注入輸送層や電子注入輸送層は必要ではないが、こ

れらの層を有する素子は発光性能が向上する利点がある。また、一対の電極間に上記正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層を混合させた形で挟持させてもよい。さらに、各成分を安定に存在させるため、高分子化合物などのバインダーを用いて混合層を作製してもよい。

【0044】ここで、本発明の有機EL素子として、陽極/正孔注入輸送層/発光層/電子注入輸送層/陰極型を例にして説明する。本発明の素子は、基板に支持されていることが好ましい。この基板については特に制限はなく、従来の有機EL素子に慣用されているものであればよく、例えばガラス、透明プラスチック、石英などからなるものを用いることができる。

【0045】このEL素子における正極としては、仕事関数の大きい(4eV以上)金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としてはAuなどの金属、CuI、ITO、SnO<sub>2</sub>、ZnOなどの導電性透明材料が挙げられる。該正極は、これらの電

極物質を蒸着やスパッタリングなどの方法により、薄膜を形成させることにより作製することができる。この電極より発光を取り出す場合には、透過率を10%より大きくすることが望ましく、また、電極としてのシート抵抗は数百 $\Omega/\square$ 以下が好ましい。さらに膜厚は材料にもよるが、通常10 nm $\sim$ 1  $\mu$ m、好ましくは10 $\sim$ 200 nmの範囲で選ばれる。

【0046】一方、陰極としては、仕事関数の小さい（4 eV以下）金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム/銅混合物、マグネシウム/銀混合物、Al/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、インジウムなどが挙げられる。該陰極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリングなどの方法により、薄膜を形成させることにより、作製することができる。また、電極としてのシート抵抗は数百Ω/□以下が好ましく、膜厚は通常10～500 nm、好ましくは50～200 nmの範囲で選ばれる。なお、発光を透過させるため、有機EL素子の陽極又は陰極のいずれか一方が、透明又は半透明であれば発光効率が向上し好都合である。

【0047】本発明の発光層の発光材料としては、上記一般式(1)で表されるアルミニウム錯体構造を有する化合物が好ましい。このアルミニウム錯体構造を有する化合物が発光層以外で用いられている場合は、発光層の発光材料について特に制限されることはなく、従来公知の化合物の中から任意のものを選択して用いることができる。

【0048】上記アルミニウム錯体構造を有する化合物以外の発光材料としては、例えば、多環縮合芳香族化合物、ベンゾオキサゾール系、ベンゾチアゾール系、ベンゾイミダゾール系などの蛍光増白剤、金属キレート化オキサノイド化合物、ジスチリルベンゼン系化合物など薄膜形成性の良い化合物を用いることができる。ここで、上記多環縮合芳香族化合物としては、例えばアントラセン、ナフタレン、フェナントレン、ピレン、クリセン、ペリレン骨格を含む縮合環発光物質等を挙げることができる。

【0049】上記ベンゾオキサゾール系、ベンゾチアゾール系、ベンゾイミダゾール系などの蛍光増白剤としては、例えば特開昭59-194393号公報に記載されているものを用いることができ、その代表例としては、2, 5-ビス(5, 7-ジ-*t*-ベンチル-2-ベンゾオキサゾリル)-1, 3, 4-チアジアゾール; 4, 4'-ビス(5, 7-*t*-ベンチル-2-ベンゾオキサゾリル)スチルベン; 4, 4'-ビス(5, 7-ジ-(2-メチル-2-ブチル)-2-ベンゾオキサゾリル)スチルベン; 2, 5-ビス(5, 7-ジ-*t*-ベンチル-2-ベンゾオキサゾリル)チオフエン; 2, 5-

ビス(5-( $\alpha$ ,  $\alpha$ , -ジメチルベンジル)-2-ベンゾオキサゾリル)チオフエン; 2, 5-ビス(5, 7-ジ-(2-メチル-2-ブチル)-2-ベンゾオキサゾリル)-3, 4-ジフェニルチオフエン; 2, 5-ビス(5-メチル-2-ベンゾオキサゾリル)チオフエン; 4, 4'-ビス(2-ベンゾオキサゾリル)ピフェニル; 5-メチル-2-(2-(4-(5-メチル-2-ベンゾオキサゾリル)フェニル)ビニル)ベンゾオキサゾール; 2-(2-(4-クロロフェニル)ビニル)ナフト(1, 2-d)オキサゾールなどのベンゾオキサゾール系、2, 2'-(p-フェニレンジビニレン)-ビスベンゾチアゾールなどのベンゾチアゾール系、2-(2-(4-(2-ベンゾイミダゾリル)フェニル)ビニル)ベンゾイミダゾール; 2-(2-(4-カルボキシフェニル)ビニル)ベンゾイミダゾールなどのベンゾイミダゾール系などの蛍光増白剤が挙げられる。さらに、他の有用な化合物としては、ケミストリー・オブ・シンセティックダイス 1971, 628~637頁及び640頁に記載のものが挙げられる。

【0050】上記金属キレート化オキサノイド化合物としては、例えば特開昭63-295695号公報に記載されているものを用いることができる。その代表例としては、トリス(8-キノリノール)アルミニウム、ビス(8-キノリノール)マグネシウム、ビス(ベンゾ(f)-8-キノリノール)亜鉛、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)アルミニウムオキシド、トリス(8-キノリノール)インジウム、トリス(5-メチル-8-キノリノール)アルミニウム、8-キノリノールリチウム、トリス(5-クロロ-8-キノリノール)ガリウム、ビス(5-クロロ-8-キノリノール)カルシウム、ポリ(亜鉛(II)-ビス(8-ヒドロキシ-5-キノリノニル)メタン)などの8-ヒドロキシキノリン系金属錯体やジリチウムエビドリジオンなどが挙げられる。また、米国特許第5,141,671号(1992年)や米国特許第5,150,006号(1992年)に記載されている金属キレート化オキサノイド化合物に多環芳香族化合物をドーブさせたものも用いることができる。この具体例としては、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(フェノラート)アルミニウム(II)、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(クレゾラート)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノラート)(フェニルフェノラート)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノラート)(ナフトラート)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム(III)-μ-オキソ-ビス(2-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム(III)などの8-ヒドロキシキノリン系金属錯体にペリレンやジベンゾペリレンなどの多環芳香族化合物をドーブさせたものが挙げられる。

【0051】他には、欧州特許第0373582号明細

書に記載のジスチリルベンゼン誘導体、同 038876 8 号明細書に記載のジメチリデン誘導体、特開平 2-191694 号公報のクマリン誘導体、特開平 2-252793 号公報のジスチリルピラジン誘導体、特開平 2-196885 号公報のペリレン誘導体、特開平 2-255789 号公報のナフタレン誘導体、特開平 2-289676 号公報及び同 2-88689 号公報のフタロペリノン誘導体、特開平 2-250292 号公報のスチリルアミン誘導体及び同 2-289675 号公報のシクロペンタジエン誘導体、欧州特許第 387715 号明細書に記載のポリフェニル系化合物など、目的とする発光色及び性能などから適宜選択することができる。

【0052】上記の有機化合物からなる発光層は、所望に応じて 2 層以上の積層構造でもよく、米国特許第 4,769,292 号明細書や米国特許第 5,141,671 号明細書に開示されているように蛍光物質や多環芳香族化合物を加えて形成してもよい。この場合上記有機化合物は薄膜状の層であり、発光領域の機能の注入機能及び発光機能の一部を受持ち、一方、蛍光物質はその有機化合物の層の中に微量（数モル%以下）存在させ、電子と正孔の再結合にตอบสนองして発光するといった発光機能の一部を担っている。この発光層は、これらの発光材料一種又は二種以上からなる一層で構成されてもよいし、あるいは、前記発光層とは別種の化合物からなる発光層を積層したものであってもよい。

【0053】次に、本発明の有機 EL 素子の正孔注入輸送層は、正孔伝達化合物から成るものであって、陽極より注入された正孔を発光層に伝達する機能を有し、この正孔注入輸送層を陽極と発光層の間に介在させることにより、より低い電界で多くの正孔が発光層に注入され、そのうえ、発光層に陰極又は電子注入輸送層より注入された電子は、発光層と正孔注入輸送層の界面に存在する電子の障壁により、発光層内の界面に累積され発光効率が向上するなど発光性能の優れた素子となる。このような正孔注入輸送層に用いられる正孔伝達化合物は、電界を与えられた 2 個の電極間に配置されて陽極から正孔が注入された場合、正孔を適切に発光層へ伝達しうるものであり、例えば  $10^1 \sim 10^6 \text{ V/cm}$  の電界印加時に少なくとも  $10^{-4} \text{ cm}^2/\text{V} \cdot \text{秒}$  の正孔移動度を有するものが好適である。この正孔伝達化合物については、前記の好ましい性質を有するものであれば特に制限はなく、従来、光導伝材料において、正孔の電荷注入輸送材料として慣用されているものや EL 素子の正孔注入輸送層に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

【0054】上記正孔伝達化合物としては、例えばトリアゾール誘導体（米国特許第 3,112,197 号などに記載のもの）、オキサジアゾール誘導体（米国特許第 3,189,447 号などに記載のもの）、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘

導体及びピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体などを挙げることができる。また、電荷注入輸送材料としては、シラザン誘導体、ポリシラン系、アニリン系共重合体、また、導電性高分子オリゴマー、特にチオフェンオリゴマーなどが挙げられる。

【0055】本発明においては、上記の正孔伝達化合物または電荷注入輸送材料を正孔注入材料として使用することができるが、次に示すボルフィリン化合物（特開昭 63-295695 号公報などに記載のもの）及び芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物（米国特許第 4,127,412 号明細書、特開昭 53-27033 号公報、同 54-58445 号公報、同 54-149634 号公報、同 54-64299 号公報、同 55-79450 号公報、同 55-144250 号公報、同 56-119132 号公報、同 61-295558 号公報、同 61-98353 号公報、同 63-295695 号公報など参照）、特に該芳香族第三級アミン化合物を用いることが好ましい。該ボルフィリン化合物の代表例としては、ボルフィン、5,10,15,20-テトラフェニル-21H,23H-ボルフィン銅 (II)；5,10,15,20-テトラフェニル-21H,23H-ボルフィン亜鉛 (II)；5,10,15,20-テトラキス（ペンタフルオロフェニル）-21H,23H-ボルフィン；シリコンフタロシアニンオキシド；アルミニウムフタロシアニクロリド；フタロシアニン（無金属）；ジリチウムフタロシアニン；銅テトラメチルフタロシアニン；銅フタロシアニン；クロムフタロシアニン；亜鉛フタロシアニン；鉛フタロシアニン；チタニウムフタロシアニンオキシド；マグネシウムフタロシアニン；銅オクタメチルフタロシアニンなどが挙げられる。

【0056】また、該芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物の代表例としては、N,N,N',N'-テトラフェニル-4,4'-ジアミノビフェニル；N,N'-ジフェニル-N,N'-ジ（3-メチルフエニル）-4,4'-ジアミノビフェニル（TPDA）；2,2-ビス（4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル）プロパン；1,1-ビス（4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル）シクロヘキサン；N,N,N',N'-テトラ-*p*-トリル-4,4'-ジアミノビフェニル；1,1-ビス（4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル）-4-フェニルシクロヘキサン；ビス（4-ジメチルアミノ-2-メチルフエニル）フェニルメタン；ビス（4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル）フェニルメタン；N,N'-ジフェニル-N,N'-ジ（4-メトキシフェニル）-4,4'-ジアミノビフェニル；N,N,N',N'-テトラフェニル-4,4'-ジアミノジフェニルエーテル；4,4'-ビス（ジフェニルアミノ）ターフ

エニル；N，N，N-トリ（p-トリル）アミン；4，4'-ビス〔4-（ジ-p-トリルアミノ）スチルベン〕；4-N，N-ジフェニルアミノ-（2，2-ジフェニルビニル）ベンゼン；3-メトキシ-4'-N，N-ジフェニルアミノスチルベン；N-フェニルカルバゾールなどが挙げられる。この正孔注入輸送層は、これらの正孔注入輸送材料一種又は二種以上からなる一層で構成されてもよいし、あるいは、前記正孔注入輸送層とは別種の化合物からなる正孔注入輸送層を積層したものであってもよい。

【0057】また、本発明で用いる有機EL素子の電子注入輸送層は、電子注入輸送材料から成るものであって、陰極より注入された電子を発光層に伝達する機能を有している。本発明の場合は、上記一般式（I）で表される化合物が好ましい。このアルミニウム錯体構造を有する化合物が、電子注入輸送層以外で用いられている場合は、電子注入材料について特に制限されることはなく、従来公知の化合物の中から任意のものを選択して用いることができる。

【0058】この電子注入輸送層は、これらの電子注入材料1種又は2種以上からなる一層で構成されてもよいし、あるいは、前記層とは別種の化合物からなる電子注入輸送層を積層したものであってもよい。さらに無機物であるp型 $\alpha$ -Si、p型 $\alpha$ -SiCによる正孔注入輸送材料、n型 $\alpha$ -Si、n型 $\alpha$ -SiCによる電子注入輸送材料を本発明における電子注入輸送材料として用いることもできる。例えば、国際公開WO90/05998に開示されている無機半導体などが挙げられる。

【0059】次に、本発明の有機EL素子を作製する好適な例を説明する。例として、前記の陽極／正孔注入輸送層／発光層／電子注入輸送層／陰極からなるEL素子の作製法について説明すると、まず適当な基板上に、所望の電極物質、例えば陽極用物質からなる薄膜を、1 $\mu$ m以下、好ましくは10～200nmの範囲の膜厚になるように、蒸着やスパッタリングなどの方法により形成させ、陽極を作製する。次に、この上に素子材料である正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層の材料からなる薄膜を形成させる。この薄膜化の方法としては、前記の如くスピンコート法、キャスト法、真空蒸着法などがあるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが生成しにくいなどの点から、真空蒸着法が好ましい。この薄膜化に、この蒸着法を採用する場合、その蒸着条件

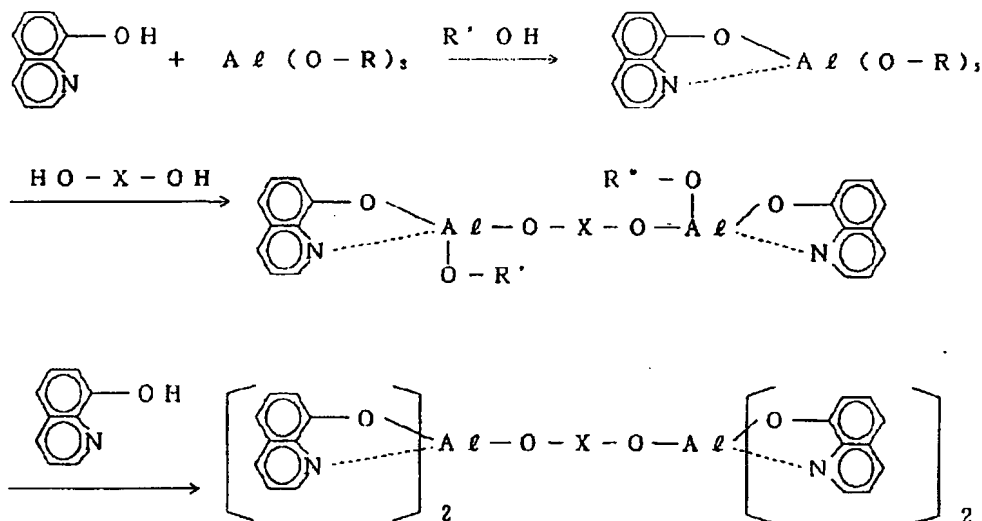
は、使用する化合物の種類、分子堆積膜の目的とする結晶構造、会合構造などにより異なるが、一般にボート加熱温度50～400℃、真空度 $10^{-6}$ ～ $10^{-3}$ Pa、蒸着速度0.01～50nm/秒、基板温度-50～300℃、膜厚5nm～5 $\mu$ mの範囲で適宜選ぶことが望ましい。これらの層の形成後、その上に陰極用物質からなる薄膜を、1 $\mu$ m以下好ましくは50～200nmの範囲の膜厚になるように、例えば蒸着やスパッタリングなどの方法により形成させ、陰極を設けることにより、所望のEL素子が得られる。なお、このEL素子の作製においては、作製順序を逆にして、陰極、電子注入輸送層、発光層、正孔注入輸送層、陽極の順に作製することも可能である。また、一对の電極間に正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層を混合させた形で挟持させた陽極／発光層／陰極からなる素子の作製方法としては、例えば適当な基板の上に、陽極用物質からなる薄膜を形成し、正孔注入輸送材料、発光材料、電子注入輸送材料、ポリビニルカルバゾール、ポリカーボネート、ポリアリレート、ポリエステル、ポリエーテルなどの結着剤などからなる溶液を塗布するか、又はこの溶液から浸漬塗工法により薄膜を形成させ発光層とし、その上に陰極用物質からなる薄膜を形成させるものがある。ここで、作製した発光層上に、さらに発光層または電子注入輸送層の材料となる素子材料を真空蒸着し、その上に陰極用物質からなる薄膜を形成させてもよい。

【0060】このようにして得られたEL素子に、直流電圧を印加する場合には、陽極を+、陰極を-の極性として電圧3～40V程度を印加すると、発光が観測できる。また、逆の極性で電圧を印加しても電流は流れずに発光は全く生じない。さらに、交流電圧を印加する場合には、正極が+、負極が-の状態になったときのみ発光する。なお、印加する交流の波形は任意でよい。

【0061】ここで、本発明の特徴である一般式（I）で表されるアルミニウム錯体構造を有する化合物の合成方法について8-ヒドロキシキノリン誘導体を例として簡単に触れておく。なお、本発明で用いるアルミニウム錯体構造を有する化合物の合成方法は、下記方法に限定されるものではない。一般式（I）のアルミニウム錯体構造を有する化合物の合成方法は、例えば下記合成スキームによる。

【0062】

【化30】



【0063】〔式中、R、R'、R''は、アルキル基を示し、R''はR又はR'であり、Xは前記と同じである。〕

具体的には、1当量の8-ヒドロキシキノリン誘導体（Hhg、上記合成スキームでは8-ヒドロキシキノリンを例にした。）およびアルミニウムアルコキサイドをアルコール（メタノール、エタノール、プロパノール、ブタノール、アミルアルコールなど）またはベンゼン、トルエンなどの溶媒中で1時間程度加熱攪拌し、放冷後、1/2当量のジヒドロキシ化合物を加えて攪拌し、さらに1当量のHhgを加えて攪拌する。この反応時間は3～20時間が好ましい。ここで、ジヒドロキシ化合物を加えた後、1時間程度加熱攪拌してから放冷後、Hhgを加えた方が副生物が少ない場合がある。また、最初に加えるHhgと2回目に加えるHhgの種類を変えることにより、異なるHhgをアルミニウムに配位することができる。ここで用いるHhgとしては、8-ヒドロキシキノリン、2-メチル-8-ヒドロキシキノリン、5-メチル-8-ヒドロキシキノリン、7-ニトロ-8-ヒドロキシキノリン、5-ニトロ-8-ヒドロキシキノリン、5-クロロ-8-ヒドロキシキノリン、5-フルオロ-8-ヒドロキシキノリンなどが挙げられる。また、8-ヒドロキシキノリン誘導体として10-ヒドロキシベンゾ（h）キノリンなども含まれる。また、アルミニウムアルコキサイドとしては、アルミニウムイソプロポキサイド、アルミニウムt-ブトキサイド、アルミニウムエトキサイドなどが挙げられる。ジヒドロキシ化合物としては、4,4'-ジヒドロキシビフェニルエーテル、3,3'-ジヒドロキシビフェニルエーテル、3,4'-ジヒドロキシビフェニルエーテル、4,4'-ジヒドロキシビフェニルチオエーテル、4,4'-ジヒドロキシビフェニルメタン、1,1-ビス（4-ヒドロキシフェニル）エタン、1,2-ビス（4-ヒドロキシフェニル）エタン、2,2-ビス（4-ヒ

ドロキシフェニル）プロパン、2,2-ビス（4-ヒドロキシフェニル）ブタン、2,2-ビス（3-メチル-4-ヒドロキシフェニル）ブタン、1,1-ビス（4-ヒドロキシフェニル）-1,1-ジフェニルメタン、1,1-ビス（4-ヒドロキシフェニル）-1-フェニルエタン、1,1-ビス（4-ヒドロキシフェニル）スルフィド、1,1-ビス（4-ヒドロキシフェニル）スルホン、1,1-ビス（4-ヒドロキシフェニル）ケトン、1,1-ビス（4-ヒドロキシフェニル）シクロヘキサン、1,1'-オキシビス（4-ヒドロキシビフェニル）、ジフェニルシランジオールなどが挙げられる。また、本発明の一般式（I）で表されるアルミニウム錯体構造を有する化合物は、有機EL素子の構成要素としてだけでなく、光学材料のコーティング材料、蛍光材料、電子材料、導波路材料、プラスチックシンチレータ、有機シンチレータ、ファイバー中のコア及びクラッドの材料、重合用触媒、顔料、インキ用添加剤などにも用いることができる。

#### 【0064】

【実施例】更に、実施例により本発明を詳細に説明するが、本発明はこれらの例によってなんら限定されるものではない。

#### 合成例1（化学式1）

ビス（2-メチル-8-キノリナート）アルミニウム（III）-μ-4,4'-オキシビス（4-フェノキシ）-ビス（2-メチル-8-キノリナート）アルミニウム（III）の合成

2-メチル-8-ヒドロキシキノリン（Hhmq、東京化成製）1.6g（0.01モル）およびアルミニウムイソプロポキサイド（東京化成製）2.0g（0.01モル）をエタノール80ミリリットルに加え、30分間加熱攪拌し放冷した。次いで、得られた溶液にボウショウ5gを加え、攪拌して濾過して得られた溶液に4,4'-ジヒ

ドロキシビフェニルエーテル1.0 g (0.005モル)を加えて攪拌し、さらにHmqを1.6 g (0.01モル)加えて加熱攪拌し、オイル浴中でアルゴン気流下5時間還流した。放冷後、析出した粉末を減圧濾過し、エタノール10ミリリットルで洗浄して乾燥し淡黄色の粉末2.0 g (0.00225モル)を得た。得られた目的物の収率は45%であった。得られた淡黄色粉末の質量分析の結果、

$m/Z = 886$  ( $M'$ )であった。また、プロトン核磁気共鳴 ( $^1H-NMR$ , 基準: テトラメチルシラン (TMS), 溶媒: ジメチルスルホキシド (DMSO), 測定波長: 400 MHz) 測定の結果、

$\delta = 2.6 \sim 3.2$  ppm (s, 12H, キノリン環のメチル基のH)

$\delta = 6.1 \sim 8.3$  ppm (m, 28H, キノリン環及びフェニル環のH)

であった。これから、飽和部位のHと不飽和部位のHの比率は3:7であることがわかる。なお、実施例においては上記淡黄色粉末を昇華精製したものをを用いた。

#### 【0065】合成例2 (化学式2)

ビス(2-メチル-8-キノリナート)アルミニウム(III)- $\mu$ -4, 4'-ジオキシジフェニルメチレン-ビス(2-メチル-8-キノリナート)アルミニウム(III)の合成

4, 4'-ジヒドロキシビフェニルエーテルの代わりに4, 4'-ジヒドロキシジフェニルメタン0.005モルを用いた以外は、合成例1と同様にして合成を行った。その結果、淡黄色の粉末4.3 g (0.0048モル)を得た。得られた目的物の収率は96%であった。得られた淡黄色粉末の質量分析の結果、 $m/Z = 884$  ( $M'$ )であった。また、 $^1H-NMR$  (基準: TMS, 溶媒: DMSO, 測定波長: 400 MHz) 測定の結果、 $\delta = 3.0$  ppm (s, 12H, キノリン環のメチル基のH)

$\delta = 2.65$  ppm (s, 2H, 中央メチレン基のH)

$\delta = 6.15 \sim 8.25$  ppm (m, 28H, キノリン環及びフェニル環のH)

であった。これから、飽和部位のHと不飽和部位のHの比率は14:28であることがわかる。さらに、元素分析(括弧内は理論値)の結果は次の通りである。

C: 71.72 (72.33)%

H: 4.63 (4.78)%

N: 6.43 (6.32)%

なお、実施例においては上記淡黄色粉末を昇華精製したものをを用いた。

#### 【0066】合成例3 (化学式4)

ビス(2-メチル-8-キノリナート)アルミニウム(III)- $\mu$ -1, 1'-オキシビス(4'-オキシ-*p*-フェニルフェニレン)-ビス(2-メチル-8-キノリナート)アルミニウム(III)の合成

4, 4'-ジヒドロキシビフェニルエーテルの代わりに、1, 1'-オキシビス(4-ヒドロキシビフェニル)0.005モルを用いた以外は、合成例1と同様にして合成を行った。その結果、白色粉末4.2 g (0.0040モル)を得た。得られた目的物の収率は81%であった。得られた白色粉末の質量分析の結果、 $m/Z = 1038$  ( $M'$ )であった。さらに、元素分析(括弧内は理論値)の結果は次の通りである。

C: 73.80 (73.98)%

H: 4.57 (4.62)%

N: 5.40 (5.39)%

なお、実施例においては、上記白色粉末を昇華精製したものをを用いた。

#### 【0067】合成例4 (化学式6)

ビス(2-メチル-8-キノリナート)アルミニウム(III)- $\mu$ -2, 2'-ビス(4-オキシフェニル)プロピレン-ビス(2-メチル-8-キノリナート)アルミニウム(III)の合成

4, 4'-ジヒドロキシビフェニルエーテルの代わりに2, 2'-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン0.005モルを用いた以外は、合成例1と同様にして合成を行った。放冷後、析出した粉末を減圧ろ過して取り除いたのち、得られた母液を約20ミリリットルまで濃縮して淡黄色の粉末を沈澱させ、減圧ろ過し、少量のエタノールで洗浄後乾燥して、淡黄色の粉末1.2 g (0.0013モル)を得た。得られた目的物の収率は26%であった。得られた淡黄色粉末の質量分析の結果、 $m/Z = 912$  ( $M'$ )であった。さらに、元素分析(括弧内は理論値)の結果は、次の通りである。

C: 84.38 (84.29)%

H: 5.36 (5.26)%

N: 6.06 (6.14)%

なお、実施例においては、上記淡黄色粉末を昇華精製したものをを用いた。

#### 【0068】合成例5 (化学式7)

ビス(2-メチル-8-キノリナート)アルミニウム(III)- $\mu$ -1, 1'-ビス(4-オキシフェニル)-ジフェニルメチレン-ビス(2-メチル-8-キノリナート)アルミニウム(III)の合成

4, 4'-ジヒドロキシビフェニルエーテルの代わりに1, 1'-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-1, 1'-ジフェニルメタン0.005モルを用いた以外は、合成例1と同様にして合成を行った。その結果、淡黄色の粉末1.76 g (0.0017モル)を得た。得られた目的物の収率は34%であった。得られた淡黄色粉末の質量分析の結果、 $m/Z = 1036$  ( $M'$ )であった。また、 $^1H-NMR$  (基準: TMS, 溶媒: DMSO, 測定波長: 400 MHz) 測定の結果、

$\delta = 2.50$  ppm (s, 12H, キノリン環のメチル基のH)

$\delta=6.06\sim 8.6$  ppm (m, 38H, キノリン環及びフェニル環のH)

なお、実施例においては、上記淡黄色粉末を昇華精製したものをを用いた。

【0069】合成例6 (化学式31)

ビス(2-メチル-8-キノリナート)アルミニウム(III)- $\mu$ -1, 1'-ジオキシ-1, 1'-ジフェニルシリレン-ビス(2-メチル-8-キノリナート)アルミニウム(III)の合成

2-メチル-8-ヒドロキシキノリン(Hmq, 東京化成製) 1.6 g (0.01モル) およびアルミニウムイソプロポキシド(東京化成製) 2.0 g (0.01モル) をエタノール80ミリリットルに加え、30分間加熱攪拌し放冷した。次いで、得られた溶液にボウショウ5 g を加え、攪拌して濾過して得られた溶液にジフェニルシランジオール(ランカスター社製) 1.08 g (0.005モル) を加えて攪拌し、さらにHmqを1.6 g (0.01モル) 加えて加熱攪拌し、オイル浴中でアルゴン気流下5時間還流した。放冷後、析出した粉末を減圧濾過し、エタノール10ミリリットルで洗浄して乾燥し淡黄色の粉末2.5 g (0.00278モル) を得た。得られた目的物の収率は56%であった。得られた淡黄色粉末の質量分析の結果、 $m/z=899$  ( $M^+$ ) であった。また、プロトン核磁気共鳴( $^1H$ -NMR, 基準: テトラメチルシラン(TMS), 溶媒: ジメチルスルホキシド(DMSO), 測定波長: 400 MHz) 測定の結果、  
 $\delta=2.35\sim 2.9$  ppm (s, 12H, キノリン環のメチル基のH)

$\delta=6.4\sim 8.5$  ppm (m, 30H, キノリン環及びフェニル環のH)

であった。なお、実施例においては上記淡黄色粉末を昇華精製したものをを用いた。

【0070】実施例1

膜厚100 nmのITO透明電極が設けられているガラス基板(25 mm $\times$ 75 mm $\times$ 1.1 mm: HOYA社製)を透明支持基板とし、これをイソプロピルアルコールで30分間超音波洗浄し、さらに浸漬して洗浄した。この透明支持基板を乾燥窒素ガスで乾燥し、市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定した。一方、モリブデン製抵抗加熱ポートに、N, N'-ジフェニル-N, N'-ビス(4-メチルフェニル)(1, 1'-ビフェニル)-4, 4'-ジアミン(TPDA) 200 mgを入

れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートに、4, 4'-ビス(2, 2'-ジフェニルビニル)ビフェニル(DPVB i) 200 mgを入れ、さらに別のモリブデン製抵抗加熱ポートに、合成例1で得られた化合物を200 mgを入れ真空蒸着装置に取りつけた。まず、真空槽を $4\times 10^{-4}$  Paまで減圧した後、TPDAの入った前記加熱ポートに通電し、220℃まで加熱して、蒸着速度0.1~0.3 nm/秒で透明支持基板に蒸着し、膜厚60 nmの正孔注入輸送層を設けた。次いで、DPVB iの入った前記加熱ポートに通電して240℃まで加熱して、蒸着速度0.1~0.3 nm/秒で上記正孔注入輸送層上に蒸着し、膜厚40 nmの発光層を設けた。さらに、合成例1で得られた化合物の入った前記加熱ポートに通電して314℃まで加熱して、蒸着速度0.1 nm/秒で上記発光層上に蒸着し、膜厚20 nmの電子注入輸送層を設けた。なお、蒸着時の基板温度は室温であった。次に、真空槽をあけ電子注入輸送層上にステンレス鋼製のマスクを設置し、一方、モリブデン製抵抗加熱ポートにはマグネシウム3 g, タングステン製の蒸着用バスケットに銀を0.5 g入れ、再度真空槽を $2\times 10^{-4}$  Paまで減圧した後、マグネシウム入りのポートに通電して、蒸着速度1.5~2.0 nm/秒でマグネシウムを蒸着すると共に、同時に銀のバスケットを加熱し蒸着速度0.1 nm/秒で銀を蒸着し、マグネシウムと銀の混合物からなる対向電極とすることにより、目的とする有機EL素子を作成した。得られた有機EL素子の構成を図1に示す。この素子のITO電極を陽極、マグネシウムと銀の混合物からなる対向電極を陰極として、直流11ボルトを印加したところ電流密度5.8 mA/cm<sup>2</sup>の電流が流れ、青色の発光(色度座標: 0.173, 0.204)が得られた。この発光の最大波長は468 nm, 輝度は84 cd/m<sup>2</sup>, 発光効率0.41ルーメン/Wであった。アルゴン気流下、通電後100時間経ても電極表面の剥離や白濁化はなく、依然青色発光が認められた。

【0071】実施例2~5

合成例1の化合物の代わりに電子注入輸送層として第1表に示す化合物を用い、蒸着時の加熱温度を第1表に示すように変えた以外は、実施例1と同様にして素子を作製し評価を行った。得られた結果を第1表に示す。

【0072】

【表1】

第 1 表

	用いた A の ホト化合物	蒸着時の温度 (°C)	印加電圧 (V)	電流密度 (mA/cm <sup>2</sup> )	発光輝度 (cd/m <sup>2</sup> )
実施例 2	合成例 3	412	11	6.7	96
実施例 3	合成例 4	290	11	8.0	112
実施例 4	合成例 5	300	11	7.4	98
実施例 5	合成例 6	320	11	9.5	102

【0073】

【表2】

第 1 表 (続き)

	発光効率 (ルーメン/W)	発光ピーク波長 (nm)	電極の 付着性	素子の寿命 (時間)
実施例 2	0.41	468	良好	100時間以上
実施例 3	0.40	468	良好	100時間以上
実施例 4	0.38	467	良好	100時間以上
実施例 5	0.31	469	良好	100時間以上

## 【0074】実施例 6

DPVB i の代わりに発光層の材料として合成例 4 で得られた化合物を用い、電子注入輸送層としてトリス (8-キノリナート) アルミニウム (III) を用い、蒸着時の加熱ポート温度をそれぞれ 290°C, 285°C に変えた以外は、実施例 1 と同様にして素子を作製し評価を行った。この素子の ITO 電極を陽極、マグネシウムと銀の混合物からなる対向電極を陰極として、直流 12.5 ボルトを印加したところ電流密度 11.6 mA/cm<sup>2</sup> の電流が流れ、緑色の発光 (色度座標: X=0.253, Y=0.467) が得られた。この発光の最大波長は 506 nm、輝度は 110 cd/m<sup>2</sup>、発光効率 0.24 ルーメン/W であった。アルゴン気流下通電後 200 時間経ても電極表面の剥離や白濁化はなく、輝度 55 cd/m<sup>2</sup> の緑色発光が認められた。

## 【0075】実施例 7

発光層の材料として、合成例 1 で得られた化合物を用い、蒸着時の加熱ポート温度を 314°C に変えた以外は、実施例 6 と同様にして素子を作製し、評価を行った。この素子の ITO 電極を陽極、マグネシウムと銀の混合物からなる対向電極を陰極として、直流 11 ボルトを印加したところ、電流密度 7.1 mA/cm<sup>2</sup> の電流が流れ、緑色の発光が得られた。この発光の最大波長は 507 nm、輝度 100 cd/m<sup>2</sup>、発光効率 0.41 ルーメン/W であった。アルゴン気流下、通電後 200 時間を経ても電極表面の剥離や白濁化はなく、依然輝度 50 cd/m<sup>2</sup> の緑色発光が認められた。

## 【0076】実施例 8

発光層の材料として、合成例 2 で得られた化合物を用い、蒸着時の加熱ポート温度を 330°C に変えた以外は、実施例 6 と同様にして素子を作製し、評価を行った。この素子の ITO 電極を陽極、マグネシウムと銀の混合物からなる対向電極を陰極として、直流 12 ボルトを印加したところ、電流密度 10.5 mA/cm<sup>2</sup> の電流が流れ、青緑色の発光が得られた。この発光の最大波長は 505 nm、輝度 120 cd/m<sup>2</sup>、発光効率 0.3 ルーメン/W であった。アルゴン気流下、通電後 110 時間を経ても輝度 60 cd/m<sup>2</sup> の青緑色発光が認められた。

## 【0077】比較例 1

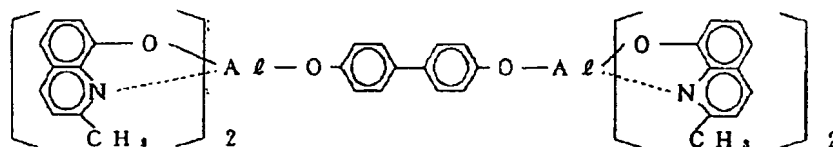
電子注入輸送層の材料としてビス (2-メチル-8-キノリナート) (フェノラート) アルミニウム (III) を用い、蒸着時の加熱ポート温度を 240°C に変えた以外は、実施例 1 と同様にして素子を作製して評価を行った。この素子の ITO 電極を陽極、マグネシウムと銀の混合物からなる対向電極を陰極として、直流 10 ボルトを印加したところ電流密度 9.5 mA/cm<sup>2</sup> の電流が流れ、青色の発光が得られた。この発光の最大波長は 475 nm、輝度は 125 cd/m<sup>2</sup>、発光効率 0.41 ルーメン/W であった。通電後、発光色が青色から白色に変わり 40 時間で輝度が半減した。

## 【0078】比較例 2

電子注入輸送層の材料としてビス (2-メチル-8-キノリナート) (p-フェニルフェノラート) アルミニ



ウム (III) を用い、蒸着時のボート温度を 260℃ に変えた以外は、実施例 1 と同様にして素子を作製して評価を行った。この素子の ITO 電極を陽極、マグネシウムと銀の混合物からなる対向電極を陰極として、直流 10 ボルトを印加したところ電流密度  $43.2 \text{ mA/cm}^2$  の電流が流れ、青色の発光が得られた。この発光の最大波長は 510 nm、輝度は  $105 \text{ cd/m}^2$ 、発光効率 0.08 ルーメン/W であった。通電後、65 時間で完全に消光した。



【0081】蒸着時の加熱ボート温度を 375℃ に変えた以外は、実施例 6 と同様にして素子を作製し、評価を行った。この素子の ITO 電極を陽極、マグネシウムと銀の混合物からなる対向電極を陰極として、直流 10 ボルトを印加したところ、電流密度  $49.6 \text{ mA/cm}^2$  の電流が流れ、緑色の発光が得られた。この発光の最大波長は 506 nm、輝度は  $78 \text{ cd/m}^2$ 、発光効率 0.05 ルーメン/W であった。発光色は緑色から黄緑色に変わり、通電後 60 時間で輝度は半減した。以上のように、一般式 (1) の化合物群を、素子の構成成分として用いることにより、発光寿命、発光色の安定性の面で優れた性能を発揮することが分かる。

【0082】

【発明の効果】本発明の有機 EL 素子は、構成成分として新規なアルミニウム錯体構造を有する化合物を用いたものであって、素子構成層が電極との付着性に優れ、かつ高輝度、高発光効率及び長寿命の優れた特性を有して

【0079】比較例 3

電子注入輸送層の材料としてトリス (8-キノリナート) アルミニウム (III) を用い、発光層として下記の構造式で表されるビス (2-メチル-8-キノリナート) アルミニウム (III)-μ-4, 4'-ジオキシビフェニレン-ビス (2-メチル-8-キノリナート) アルミニウム (III) を用い、

【0080】

【化 31】

おり、各種表示装置における発光素子として好適に用いられる。また、本発明のアルミニウム錯体構造を有する化合物は、有機 EL 素子の構成成分として用いることにより、該素子に上記の優れた特性をもたらす上、光学材料のコーティング材料、電子材料、導波路材料、シンチレーターなどにも好適に用いることができる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】 図 1 は本発明の有機 EL 素子の一例の構成図を示す。

【符号の説明】

- 1: 陰極
- 2: 電子注入輸送層
- 3: 発光層
- 4: 正孔注入輸送層
- 5: ITO 電極
- 6: ガラス基板

【図 1】

